

(19)日本国特許庁 (J P)

## (12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平6-271773

(43)公開日 平成6年(1994)9月27日

(51)Int.Cl. <sup>5</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 8 L 83/08	L R N	8319-4 J		
C 0 8 K 5/54	L R U	7242-4 J		
C 0 8 L 83/05				
83/12		8319-4 J		
C 0 9 D 183/08	P M S	8319-4 J		

審査請求 未請求 請求項の数 1 F D (全 10 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願平5-85733

(22)出願日 平成5年(1993)3月19日

(71)出願人 000002060

信越化学工業株式会社

東京都千代田区大手町二丁目6番1号

(72)発明者 木下 博文

群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10

信越化学工業株式会社シリコン電子材料

技術研究所内

(72)発明者 山口 浩一

群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10

信越化学工業株式会社シリコン電子材料

技術研究所内

(74)代理人 弁理士 小島 隆司

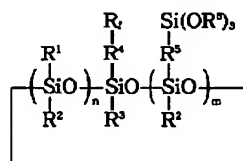
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 オルガノポリシロキサン組成物

(57)【要約】 (修正有)

【目的】 接着性、密着性に優れた硬化物を与え、電気電子分野のバッキング用、シーリング用、コーティング用材料として好適なオルガノポリシロキサン組成物を得る。

【構成】 (A) 1分子中にSiに結合した脂肪族不飽和結合を有する一価炭化水素基を2個以上有し、Siに結合した一価パーフルオロアルキル基及び一価パーフルオロポリエーテル基から選ばれる基を1個以上有する直鎖状の含フッ素オルガノポリシロキサン、(B) 接着付与剤として次式の環状の含フッ素オルガノシロキサン、



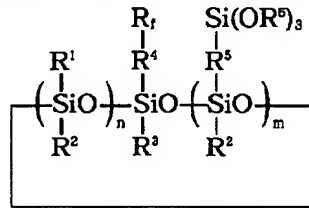
(R<sup>1</sup>は脂肪族不飽和結合を有する一価炭化水素基、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>及びR<sup>4</sup>は脂肪族不飽和結合を有さない一価炭化水素基、R<sup>5</sup>及びR<sup>6</sup>は脂肪族不飽和結合を有さない二

価炭化水素基、R<sub>r</sub>は一価パーフルオロポリエーテル基又は一価パーフルオロアルキル基、m、nはn+m=3、n≥1、m≥1を満たす数である。) (C) 1分子中にSiに結合したHを2個以上有するオルガノヒドロポリシロキサン、(D) 白金族金属系触媒を配合。

1

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 (A) 1分子中にケイ素原子に結合した脂肪族不飽和結合を有する一価炭化水素基を少なくとも2個有し、かつ1分子中にケイ素原子に結合した一価パーフルオロアルキル基及び一価パーフルオロポリエーテル基



(但し、式中R<sup>1</sup>は脂肪族不飽和結合を有する非置換又は置換一価炭化水素基、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>及びR<sup>6</sup>はそれぞれ同一又は異種の脂肪族不飽和結合を有さない非置換又は置換一価炭化水素基、R<sup>4</sup>及びR<sup>5</sup>はそれぞれ同一又は異種の脂肪族不飽和結合を有さない非置換又は置換二価炭化水素基であり、R<sub>f</sub>は一価パーフルオロポリエーテル基又は一価パーフルオロアルキル基であり、m、nはn+m=3、n≥1、m≥1を満たす数である。)

(C) 1分子中にケイ素原子に結合した水素原子を少なくとも2個有するオルガノヒドロポリシロキサン、

(D) 白金族金属系触媒を配合してなることを特徴とするオルガノポリシロキサン組成物。

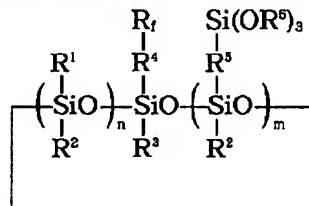
## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、含フッ素シリコンゴム本来の優れた特性を有する上、各種材料に対する接着性及び密着性に優れた硬化物を与え、電気、電子分野のバックিং用、シーリング用及びコーティング用材料として好適なオルガノポリシロキサン組成物に関する。

## 【0002】

【従来の技術及び発明が解決しようとする課題】従来、含フッ素シリコンゴムは、電気絶縁性、耐熱性、耐寒性、耐候性などのシリコンゴム由来の優れた特性に加え、耐溶剤性、撥水性、撥油性、離型性などの表面特性にも優れているが、その反面、各種基材に対する接着性に劣るという欠点を有している。従って、表面特性等の各種特性に優れ、かつ接着性の面でも満足し得る含フッ素シリコンゴムの開発が望まれる。



(但し、式中R<sup>1</sup>は脂肪族不飽和結合を有する非置換又は置換一価炭化水素基、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>及びR<sup>6</sup>はそれぞれ同一又は異種の脂肪族不飽和結合を有さない非置換又は置

2

\* ル基から選ばれる基を少なくとも1個有する直鎖状の含フッ素オルガノポリシロキサン、

(B) 接着付与剤として下記一般式(1)で示される環状の含フッ素オルガノポリシロキサン、

## 【化1】

… (1)

※【0003】本発明は上記事情に鑑みなされたもので、含フッ素シリコンゴム本来の優れた特性を有する上、各種材料に対する接着性及び密着性にも優れた硬化物を与えるオルガノポリシロキサン組成物を提供することを目的とする。

## 【0004】

【課題を解決するための手段及び作用】本発明者は上記目的を達成するため鋭意検討を重ねた結果、1分子中にケイ素原子に結合した脂肪族不飽和結合を有する一価炭化水素基を少なくとも2個有し、かつ1分子中にケイ素原子に結合した一価パーフルオロアルキル基及び一価パーフルオロポリエーテル基から選ばれる基を少なくとも1個有する直鎖状の含フッ素オルガノポリシロキサンと、下記一般式(1)で示される環状の含フッ素オルガノポリシロキサンと、1分子中にケイ素原子に結合した水素原子を少なくとも2個有するオルガノヒドロポリシロキサンと、白金族金属系触媒とを配合し、かつ好ましくは前記オルガノヒドロポリシロキサンの量を組成物全体の脂肪族不飽和基1モルに対し、SiH基が0.5～5モルとなる範囲とした場合、含フッ素シリコンゴム本来の優れた特性を有する上、式(1)の含フッ素オルガノポリシロキサンが接着性付与剤として作用してガラス、アルミニウム、鉄、エポキシ樹脂等の各種基材に対する接着性に優れ、かつ溶剤膨潤性が良好で密着性にも優れたシリコンゴム硬化物を与えるオルガノポリシロキサン組成物が得られることを知見し、本発明をなすに至った。

## 【0005】

※40 【化2】

… (1)

換一価炭化水素基、R<sup>4</sup>及びR<sup>5</sup>はそれぞれ同一又は異種の脂肪族不飽和結合を有さない非置換又は置換二価炭化水素基であり、R<sub>f</sub>は一価パーフルオロポリエーテル基

又は一価パーフルオロアルキル基であり、 $m$ 、 $n$ は $n+m=3$ 、 $n \geq 1$ 、 $m \geq 1$ を満たす数である。）

【0006】従って、本発明は、(A) 1分子中にケイ素原子に結合した脂肪族不飽和結合を有する一価炭化水素基を少なくとも2個有し、かつ1分子中にケイ素原子に結合した一価パーフルオロアルキル基及び一価パーフルオロポリエーテル基から選ばれる基を少なくとも1個有する直鎖状の含フッ素オルガノポリシロキサン、

(B) 上記一般式(1)で示される環状の含フッ素オルガノシロキサン、(C) 1分子中にケイ素原子に結合した水素原子を少なくとも2個有するオルガノヒドロポリシロキサン、(D) 白金族金属系触媒を配合してなることを特徴とするオルガノポリシロキサン組成物を提供する。

【0007】以下、本発明につき更に詳細に説明すると、本発明のオルガノポリシロキサン組成物の第1成分は、1分子中にケイ素原子に結合した脂肪族不飽和結合\*

＊を有する一価炭化水素基を少なくとも2個有し、かつ1分子中に一価パーフルオロアルキル基及び一価パーフルオロポリエーテル基から選ばれる基を少なくとも1個有する直鎖状の含フッ素オルガノポリシロキサンである。

【0008】上記直鎖状のアルケニル基含有含フッ素オルガノポリシロキサンとしては、例えば下記一般式

(2)で示されるシクロトリシロキサン、下記一般式

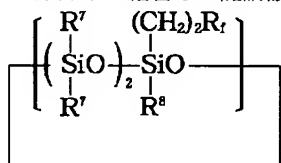
(3)で示されるシクロトリシロキサン又は下記一般式

(4)で示されるシクロトリシロキサンを下記一般式

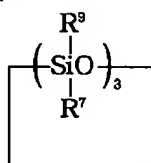
10 (5)で示される化合物の共存下、酸又はアルカリ触媒を用いて共重合させるか、あるいは下記式(6)で示されるシラノレート触媒を用いて重合させることにより得ることができる下記一般式(7)で示される重合体が好適に使用できる。

【0009】

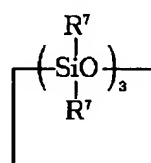
【化3】



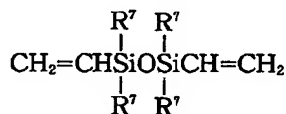
(2)



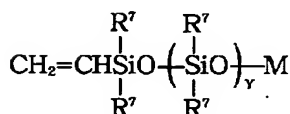
(3)



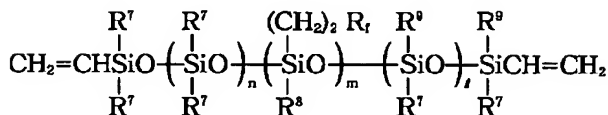
(4)



(5)



(6)



(7)

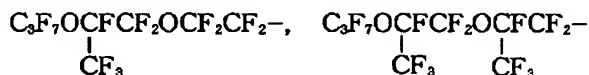
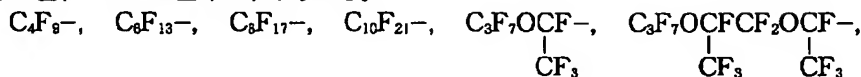
(但し、式中 $\text{R}^7$ 、 $\text{R}^8$ はそれぞれ脂肪族不飽和結合を有さない非置換又は置換一価炭化水素基、 $\text{R}^9$ は脂肪族不飽和結合を有する一価炭化水素基、 $\text{R}^1$ は一価パーフルオロアルキル基又は一価パーフルオロポリエーテル基である。)

【0010】上記式中 $\text{R}^7$ 、 $\text{R}^8$ としては、例えばメチル基、エチル基、イソプロピル基、ブチル基等のアルキル基、シクロヘキシル基、シクロペンチル基等のシクロアルキル基、フェニル基、トリル基、キシリル基等のアリール基、ベンジル基、フェニルエチル基等のアラルキル

5

6

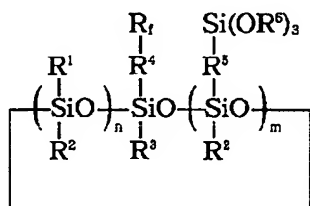
基、クロロメチル基、クロロプロピル基、クロロシクロヘキシル基、3, 3, 3-トリフルオロプロピル基等のハロゲン化炭化水素基、2-シアノエチル基等のシアノ炭化水素基などが挙げられ、また、R<sup>9</sup>としては、例えばビニル基、アリル基、エチニル基等が挙げられる。 \*



【0013】また、上記式(7)において、n=2~3 000, m=1~1000, l=0~50の整数である。

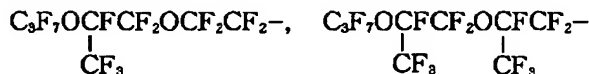
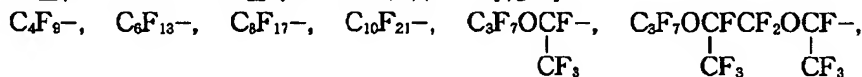
【0014】なお、重合触媒として使用するアルカリ又は酸としては、具体的に水酸化リチウム、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等の水酸化アルカリ、リチウムシリコネート、ナトリウムシリコネート、カリウムシリコネート等のアルカリシリコネート、テトラブチルホスフィンハイドロキサイド、テトラメチルアンモニウムハイドロキサイド等の四級塩ハイドロキサイド、下記構造式の5配位ケイ素化合物、硫酸、トリフルオロメタンスルホン酸等のスルホン酸類などを例示することができる。

【0015】



(但し、式中R<sup>1</sup>は脂肪族不飽和結合を有する非置換又は置換一価炭化水素基、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>及びR<sup>6</sup>はそれぞれ同一又は異種の脂肪族不飽和結合を有さない非置換又は置換一価炭化水素基、R<sup>4</sup>及びR<sup>5</sup>はそれぞれ同一又は異種の脂肪族不飽和結合を有さない非置換又は置換二価炭化水素基であり、R<sub>f</sub>は一価パーフルオロポリエーテル基又は一価パーフルオロアルキル基であり、m, nはn+m=3, n≥1, m≥1を満たす数である。)

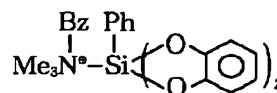
【0019】ここで、上記式(1)中のR<sup>1</sup>としては、例えばビニル基、アリル基、ブテニル基、スチリル基等が挙げられ、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>、R<sup>6</sup>としては、例えばメチル基、エチル基、イソプロピル基、ブチル基等のアルキル基、シクロヘキシル基、シクロペンチル基等のシクロア



\*【0011】更に、R<sub>f</sub>としては、下記の基が挙げられる。

【0012】

【化4】



【0016】このような方法で得られる上記式(7)の脂肪族不飽和結合を有する一価炭化水素基含有含フッ素オルガノポリシロキサンは、100~50,000cpsであることが好ましい。

【0017】次に、第2成分である含フッ素オルガノシロキサンは、接着性付与剤として作用するもので、下記一般式(1)で示されるものである。

【0018】

【化6】

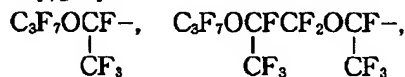
... (1)

★ルキル基、フェニル基、トリル基、キシリル基等のアリール基、ベンジル基、フェニルエチル基等のアラルキル基、クロロメチル基、クロロプロピル基、クロロシクロヘキシル基、3, 3, 3-トリフルオロプロピル基等のハロゲン化炭化水素基、2-シアノエチル基等のシアノ炭化水素基などが挙げられる。R<sup>4</sup>、R<sup>5</sup>としては、例えばエチレン基、プロピレン基、ブチレン基等のアルキレン基、フェニレン基、トリレン基等のアリーレン基等の二価炭化水素基が挙げられる。

【0020】また、R<sub>f</sub>としては、下記の基が例示される。

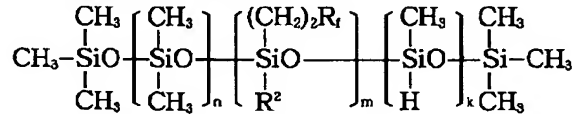
【0021】

【化7】

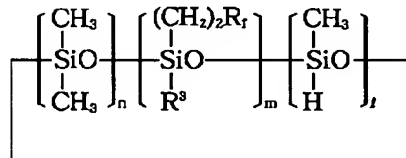
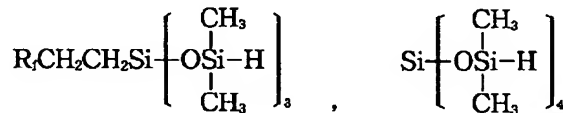


【0022】なお、上記式(1)の含フッ素オルガノシロキサンとしては、均一な硬化物を得るために第1成分と相溶するものを使用することが望ましい。

【0023】上記第1成分の含フッ素オルガノポリシロキサンと第2成分の含フッ素オルガノシロキサンの配合割合は、第1成分のオルガノポリシロキサン100部(重量部、以下同じ)に対して0.01~30部、特に0.05~15部とすることが好ましく、第2成分の配合量が0.01部に満たないと接着力が不十分になる場合\*



( $n \geq 0$ ,  $m \geq 0$ ,  $k > 0$ )



( $\text{CH}_3$ )<sub>3</sub>・HSiO<sub>3/2</sub>単位とSiO<sub>2</sub>単位とからなる共重合体(上記式中、R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>は前記と同様であり、 $n \geq 0$ ,  $m \geq 0$ ,  $k > 0$ である。)

【0026】上記第3成分のオルガノヒドロポリシロキサンの配合量は、組成物中の脂肪族不飽和基1モルに対して第3成分のオルガノヒドロポリシロキサン中のけい素原子に結合した水素原子(≡SiH)を0.5~5モル、特に0.5~3モル与える量とすることが好ましい。第3成分の配合量が上記水素原子を0.5モル与える量より少ないと硬化せずに液状の場合があり、5モル与える量より多いと発泡したり、圧縮永久歪が悪化する場合がある。

【0027】更に、本発明組成物に第4成分として配合する白金族化合物は、硬化触媒として働くもので、例えば白金黒、塩化白金酸、塩化白金酸とアルコール、エーテル、アルデヒド、エチレン等のオレフィン、ビニルシラン、ビニルシロキサンなどとのコンプレックス、アルミナ、シリカ、アスベスト等の各種担体に白金粉末を担持させたものなどが挙げられる。

【0028】第4成分の白金族化合物の添加量は、第1成分100部に対して白金量として1~500ppm、特に5~20ppmの範囲が好ましい。

【0029】また、本発明組成物には、任意成分として煙霧質シリカ、沈降性シリカ、カーボン粉末、二酸化チタン、酸化アルミニウム、石英粉末、タルク、セリサイ

\* 合があり、30部を超えると耐熱性、圧縮永久歪特性などに劣る場合がある。

【0024】本発明の第3成分である1分子中にけい素原子に結合した水素原子を少なくとも2個有するオルガノヒドロポリシロキサンは、架橋剤として作用するもので、具体的には下記化合物が好適に使用される。

【0025】

【化8】

ト、ペントナイト等の補強剤、アスベスト、ガラス繊維、有機繊維等の繊維質充填剤、ジフェニルシランジオール、低重合度の分子鎖末端水酸基封鎖ジメチルポリヒドロキサン、ヘキサメチルジシラザン等の分散剤、酸化第一鉄、酸化第二鉄、酸化セリウム、オクチル酸鉄等の耐熱性向上剤、顔料などをシリコンゴムに通常使用されている各種添加剤を加えることもできる。なお、これら任意成分の添加量は、本発明の効果を妨げない範囲で通常量とすることができる。

【0030】本発明の組成物は、上記した第1~4成分、更には任意成分の所定量を各種混合機を用いて均一に混練することにより得ることができる。

【0031】このようにした得られる本発明のオルガノポリシロキサン組成物は、常圧又は加圧下で100~200℃で30秒~1時間加熱すると硬化し、各種特性に優れたゴム弾性体を与える。また、各種被着材上で硬化させると良好な接着性を示す。

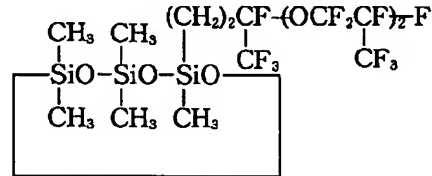
【0032】

【発明の効果】本発明のオルガノポリシロキサン組成物は、含フッ素シリコンゴム本来の優れた特性を有する上、各種基材に対して優れた接着性を有する硬化物を与えるもので、電気、電子分野のパッキング用、シーリング用及びコーティング用材料として好適に使用することができる。

【0033】

【実施例】以下、実施例及び比較例を示して本発明を具体的に説明するが、本発明は下記実施例に制限されるものではない。なお、各例中の部はいずれも重量部である。

【0034】【実施例1、比較例1】攪拌装置付1リットルのセバラブルフラスコに下記式(8)で示されるシメ

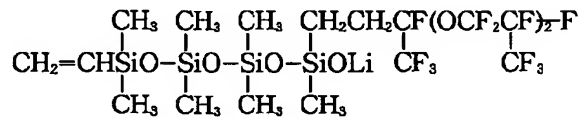


(8)

\* クロトリシロキサン1000g (1.458モル) 及び下記式(9)で示されるリチウムシラノレート11.9g (0.0146モル)、テトラグライム1.0gを入れて窒素雰囲気下100℃で5時間反応させた。

【0035】

【化9】



(9)

【0036】次に、これを降温し、50℃にて下記式

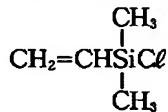
※入し、2時間攪拌し、中和と末端シリル化を行った。

(10)の化合物2.6g (0.0219モル)、下記

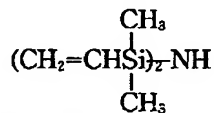
【0037】

式(11)の化合物6.1g (0.0328モル)を投※20

【化10】



(10)

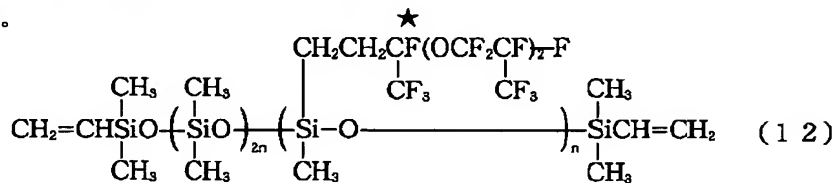


(11)

【0038】その後、濾過、ストリップを行ったところ、下記式(12)で示される粘度3570c sの重合物938gを得た。

★【0039】

30 【化11】



(12)

 $n \approx 100$ 

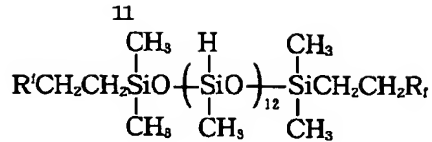
【0040】得られた式(12)の重合物100部、比表面積300m<sup>2</sup>/gの煙霧質シリカ15部を150℃

ルエン溶液(白金濃度1.0%)0.1g及びエチルシクロヘキサノール50%トルエン溶液0.4g及び接着剤として下記式(14)の化合物1.0gを加えて混合し、組成物Iを得た。

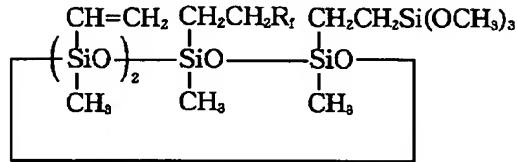
【0041】更に、下記式(13)で示される化合物1.8g、カーボンブラック0.2g、塩化白金酸の

【0042】

【化12】



(13)



(14)



【0043】また、上記接着助剤を添加しない以外は組成物Iと同様にして組成物IIを得た。

【0044】得られた組成物I、IIを温度150℃、圧力100kg/cm<sup>2</sup>の条件下15分間プレスして厚さ2mmのシートを作成した後、更に150℃で1時間加熱処理し、この加熱処理後のシートをJIS K6320

\*が得られた。

【0045】更に、図1に示すような剪断接着力試験用サンプルを作成し、ガラス、アルミ、鉄、エポキシに対する剪断接着力を測定したところ、表2に示すような結果が得られた。

【0046】

01に準じてゴム物性を調べたところ、表1に示す結果\*

【表1】

	実施例 1	比較例 1
	組成物 I	組成物 II
硬 さ (JIS-A)	27	25
伸 び (%)	300	320
引 張 強 さ (kgf/cm <sup>2</sup> )	33	31

【0047】

※30※【表2】

被 着 体	実 施 例 1		比 較 例 1	
	組 成 物 I		組 成 物 II	
	①	②	①	②
ガ ラ ス	19.0	100	8.2	10
アルミニウム	16.5	100	7.2	0
鉄	20.5	100	6.5	0
エポキシ樹脂	18.3	100	9.0	0

①剪断接着力 (kgf/cm<sup>2</sup>) ②凝集破壊率 (%)

表1、2の結果より、本発明組成物からなるシートは、良好なゴム物性を有する上、各種被着体に対して優れた接着性を有することがわかった。

【0048】次に、上記組成物Iのシートの表3に示す溶剤に対する溶剤膨潤性を体積変化率及び重量変化率(20℃で72時間浸漬後の体積及び重量を初期の体積、重量で割って算出)を測定することにより評価し

た。なお、比較のため、信越化学工業(株)製ジメチルシリコンゴムKE951及びフルオロシリコンゴムFE251(トリフルオロプロピルメチルシロキサンゴムタイプ)の溶剤膨潤性も同様に評価した。結果を表3に示す。

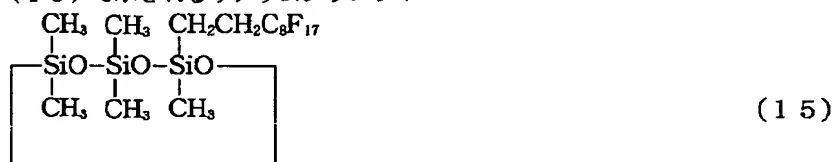
【0049】

【表3】

		実施例1	比 較 品	
溶 剤		組成物 I	KE951	FE251
アセトン	体積変化率 (%)	21	26	126
	重量変化率 (%)	12	21	71
酢酸エチル	体積変化率 (%)	32	143	120
	重量変化率 (%)	23	134	76
トルエン	体積変化率 (%)	30	270	18
	重量変化率 (%)	18	217	11
四塩化炭素	体積変化率 (%)	30	346	17
	重量変化率 (%)	33	416	16
ヘキサン	体積変化率 (%)	19	186	10
	重量変化率 (%)	9	119	2

表3の結果より、本発明組成物からなるシートは、溶剤膨潤性が良好であることがわかった。

【0050】〔実施例2、比較例2〕攪拌装置付1リットルのセパラブルフラスコに下記式(15)で示されるシクロトリシロキサン1000g(1.529モル)及び下記平均分子式(16)で示されるリチウムシラノレ\*

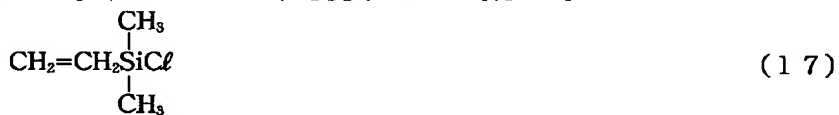


【0052】次に、これを降温し、50℃にて下記式(17)の化合物2.8g(0.023モル)、下記式(18)の化合物6.4g(0.035モル)を投入 ※

※し、2時間攪拌し、中和とシリル化を行った。

【0053】

【化14】



【0054】その後、濾過、ストリップを行ったところ、下記式(19)で示される粘度10510c sの重合体911gを得た。

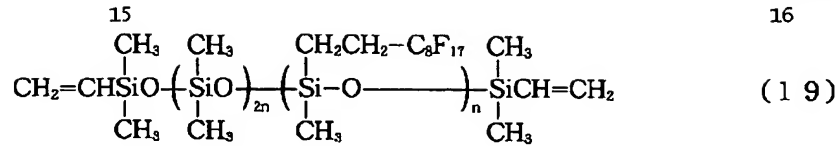
【0055】

【化15】

\*ート7.5g(0.0153モル)、テトラグライム 1.0gを入れて窒素雰囲気下100℃で5時間反応させた。

【0051】

【化13】



$$n \approx 100$$

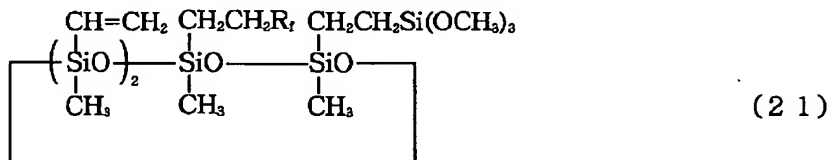
【0056】得られた重合物100部、比表面積300 m<sup>2</sup>/gの煙霧質シリカ15部を150℃/3時間ニードで混練した。

＊ニルシクロヘキサノール50%トルエン溶液0.4g及び接着剤として下記式(21)の化合物1.0gを加えて混合し、組成物IIIを得た。

【0057】更に、下記式(20)で示される化合物0.58g、カーボンブラック0.2g、塩化白金酸の10%アルコール溶液(白金濃度0.5%)0.2g及びエチ\*

【0058】

【化16】



(R<sub>f</sub>: C<sub>6</sub>F<sub>17</sub>)

【0059】また、上記接着剤を添加しない以外は組成物IIIと同様にして組成物IVを得た。

※得られた。また、溶剤膨潤性の評価結果は表6に示すとおりであった。

【0060】得られた組成物III、IVを用いて実施例1と同様にしてシート及び剪断接着力試験用サンプルを作成し、物性を調べたところ、表4、5に示す結果が※

【0061】

【表4】

	実施例 2	比較例 2
	組成物 III	組成物 IV
硬 さ (JIS-A)	30	29
伸 び (%)	350	370
引 張 強 さ (kgf/cm <sup>2</sup> )	38	39

【0062】

★★【表5】

被 着 体	実施例 2		比較例 2	
	組成物 III		組成物 IV	
	①	②	①	②
ガ ラ ス	17.2	100	7.3	0
アルミニウム	16.9	100	6.2	0
鉄	18.3	100	5.9	0
エポキシ樹脂	17.5	100	9.2	10

①剪断接着力 (kgf/cm<sup>2</sup>) ②凝集破壊率 (%)

【0063】

【表6】

溶 剤	組成物 I
アセトン	体積変化率 (%)
	重量変化率 (%)
酢酸エチル	体積変化率 (%)
	重量変化率 (%)
トルエン	体積変化率 (%)
	重量変化率 (%)
四塩化炭素	体積変化率 (%)
	重量変化率 (%)
ヘキサン	体積変化率 (%)
	重量変化率 (%)

\*【図面の簡単な説明】

【図1】 実施例で使用した剪断接着力試験用サンプルの概略図である。

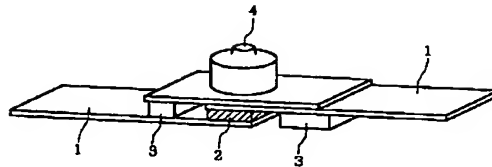
【符号の説明】

- 1 被着材  
2 シール材  
3 スペース  
4 重錘

10

\*

【図1】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.<sup>3</sup>

C 0 9 J 183/08

識別記号

J G F

庁内整理番号

8319-4J

F I

技術表示箇所

(72)発明者 松田 高至

群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10  
信越化学工業株式会社シリコン電子材料  
技術研究所内

(72)発明者 福田 健一

群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10  
信越化学工業株式会社シリコン電子材料  
技術研究所内

(72)発明者 小林 延幸

群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10  
信越化学工業株式会社シリコン電子材料  
技術研究所内

(72)発明者 佐藤 伸一

群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10  
信越化学工業株式会社シリコン電子材料  
技術研究所内

(72)発明者 木南 齊

群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10  
信越化学工業株式会社シリコン電子材料  
技術研究所内